

**PRIORITY  
DOCUMENT**

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)



REC'D 25 MAY 2004

POST EPO-BERLIN

0 7 -04- 2004

**Prioritätsbescheinigung über die Einreichung  
einer Patentanmeldung**

**Aktenzeichen:**

103 13 200.7

**Anmeldetag:**

19. März 2003

**Anmelder/Inhaber:**

Agrolinz Melamin GmbH, Linz/AT

**Bezeichnung:**

Prepregs für Faserverbunde  
hoher Festigkeit und Elastizität

**IPC:**

C 08 J, C 09 D, C 08 G

**Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ur-  
sprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.**

München, den 31. März 2004  
**Deutsches Patent- und Markenamt**  
Der Präsident  
Im Auftrag

Kahle

## Prepregs für Faserverbunde hoher Festigkeit und Elastizität

Die Erfindung betrifft Aminoplaste enthaltende Prepregs für Faserverbunde hoher Festigkeit und Elastizität sowie ein Verfahren zu deren Herstellung.

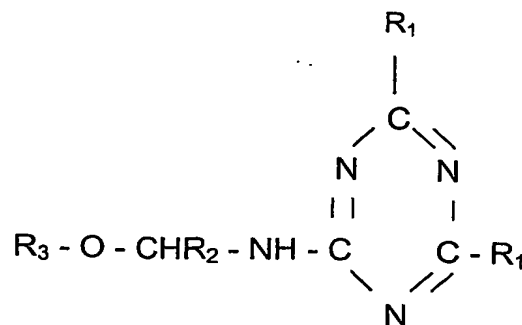
Der Einsatz von Aminoplasten wie Melaminharzen zur Verbesserung der Faltenbeständigkeit, Flammfestigkeit und Verrottungsresistenz von textilen Flächengebilden aus Celluloseacetat (GB 1 164 424 A1), Polyamid (JP 53 028 707 A2) oder Polyester (GB 2 028 352 B2) ist bekannt.

Weiterhin bekannt ist die Herstellung von Faserverbunden aus Prepregs auf Basis von Matten oder Vliesen aus Glasfasern (US 3 574 027 A), Jutefasern (JP 10 016 123 A2), Keramikfasern (JP 04 316 836 A2) Asbestfasern (DE 19 10 097 A1) oder Flachsfasern [Hagstrand, P., Polym. Compos.(2001), 22(4), 568-578], die mit Aminoplasten wie Harnstoff- oder Melaminharzen imprägniert sind.

Von Nachteil bei der Verwendung üblicher Aminoplast-Laminierharze bei der Herstellung von Faserverbunden ist die unbefriedigende Eigenschaftskombination von Festigkeit und Elastizität der Verbunde.

Ziel der Erfindung sind Aminoplaste enthaltende Prepregs für Faserverbunde, die eine verbesserte Festigkeit und Elastizität besitzen.

Die Aufgabe der Erfindung wurde durch Prepregs für Faserverbunde gelöst, die erfindungsgemäss aus 50 bis 85 Masse% textilen Flächengebilden und 15 bis 50 Masse% Carbamidsäureestergruppen enthaltenden Polyaminotriazinethern auf Basis von A) Aminotriazinethern der Struktur



$R_1 = -NH_2, -NH-CHR_2-OH, -NH-CHR_2-O-R_3, NH-CHR_2-O-R_4-OH, -CH_3, -C_3H_7, -C_6H_5, -OH,$   
 Phthalimido-, Succinimido-,  $-NH-CO-C_5-C_{18}-Alkyl, -NH-C_5-C_{18}-Alkylen-OH,$   
 $-NH-CHR_2-O-C_5-C_{18}-Alkylen-NH_2, -NH-C_5-C_{18}-Alkylen-NH_2,$

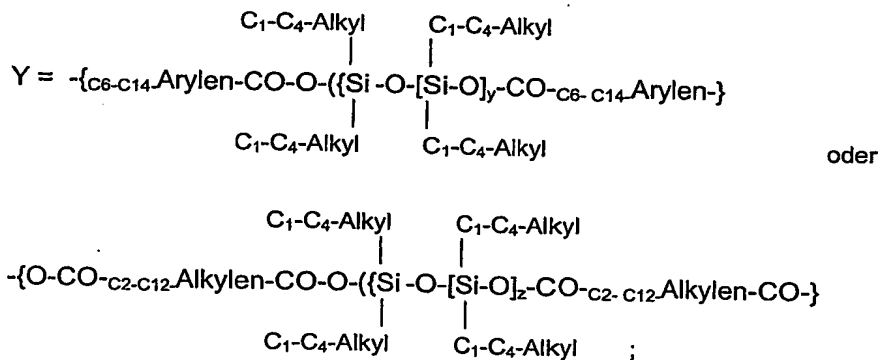
$R_2 = H, C_1-C_7 - Alkyl;$

$R_3 = C_1-C_{18} - Alkyl, HO-R_4-$

$R_4 = -CH(CH_3)-CH_2-O-C_2-C_{12}-Alkylen-O-CH_2-CH(CH_3)-,$   
 $-CH(CH_3)-CH_2-O-C_2-C_{12}-Arylen-O-CH_2-CH(CH_3)-,$   
 $-[CH_2-CH_2-O-CH_2-CH_2]_n-, -[CH_2-CH(CH_3)-O-CH_2-CH(CH_3)]_n-, -[-O-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2-]_n-,$   
 $-[(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_6-C_{14}-Arylen-CO-O-(CH_2)_{2-8}]_n-,$   
 $-[(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_2-C_{12}-Alkylen-CO-O-(CH_2)_{2-8}]_n-,$   
 wobei  $n = 1$  bis  $200$ ;

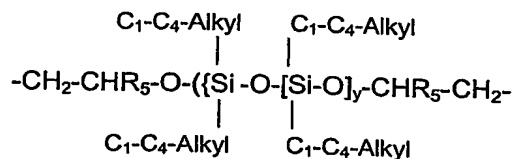
- Siloxangruppen enthaltende Polyestersequenzen des Typs  $-[(X)_r-O-CO-(Y)_s-CO-O-(X)_r]-,$   
 bei denen

$X = \{(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_6-C_{14}-Arylen-CO-O-(CH_2)_{2-8}\}$  oder  
 $-[(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_2-C_{12}-Alkylen-CO-O-(CH_2)_{2-8}];$



$r = 1$  bis  $70$ ;  $s = 1$  bis  $70$  und  $y = 3$  bis  $50$  bedeuten;

- Siloxangruppen enthaltende Polyethersequenzen des Typs



wobei  $R_5 = H; C_1-C_4-Alkyl$  und  $y = 3$  bis  $50$  bedeuten;

- Sequenzen auf Basis von Alkylenoxidaddukten des Melamins vom Typ  
 2-Amino-4,6-di- $C_2-C_4$ -alkylenamino-1,3,5-triazin - Sequenzen:

- Phenoethersequenzen auf Basis zweiwertiger Phenole und C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-Diolen vom Typ  
-C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-Alkylen-O-C<sub>6</sub>-C<sub>18</sub>-Arylen-O-C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-Alkylen- Sequenzen;

und/oder

B) Mischungen aus 10 bis 90 Masse% Aminotriazinethern A) und 90 bis 10 Masse% Polyaminotriazinethern mit Molmassen von 300 bis 5000, wobei die Polyaminotriazinether durch thermische Selbstkondensation von Aminotriazinethern A) gebildet werden,

und

C) Isocyanaten der Formel  $R_6 (N = C = O)_2$ ,

wobei  $R_6 = C_6-C_{14}$ -Arylen, C<sub>4</sub> - C<sub>18</sub>-Alkylen, und/oder C<sub>5</sub> - C<sub>8</sub> - Cycloalkylen, und/oder oligomere Polyester bzw. Polyether mit Isocyanat- Endgruppen und Molmassen von 200 bis 5000,

bestehen, wobei das Molverhältnis Triazinsegment / Carbamidsäureestergruppen 1 : 1 bis 1 : 4 beträgt.

In den Prepregs sind die textilen Trägermaterialien bevorzugt Gewebe oder Vliese, insbesondere Gewebe oder Vliese aus Glasfasern, Kohlenstofffasern, Polyamidfasern, Polyesterfasern, Polypropylenfasern und/oder Duroplastfasern.

Beispiele für Polyamidfasern, aus denen die textilen Trägermaterialien in den Prepregs bestehen können, sind Fasern aus Polyamid-6, Polyamid-6,6, Polyamid-11 Polyamid-12 und Poly-m-phenylenisophthalamid.

Beispiele für Polyesterfasern, aus denen die textilen Trägermaterialien in den Prepregs bestehen können, sind Fasern aus Polyethylenterephthalat, Polybutylenterephthalat oder Poly-p-oxybenzoesäure.

Beispiele für Duroplastfasern, aus denen die textilen Trägermaterialien in den Prepregs bestehen können, sind Fasern aus Melaminharzen oder Phenolharzen.

In den Carbamidsäureestergruppen enthaltenden Polyaminotriazinethern der Prepregs ist das Verhältnis Aldehydkomponente/Triazinkomponente bevorzugt 1 : 1 bis 3 : 1.

Beispiele für geeignete Aminotriazinkomponenten in den Aminotriazinethern, die durch den Substituent  $R_1$  in der Strukturformel definiert sind, sind Melamin, Acetoguanamin, Benzoguanamin, Butyroguanamin, N-(4,6-Diamino-1,3,5-triazin-2-yl)phthalimid und 2,4-Diamino-6-succinimido-1,3,5-triazin.

Beispiele für geeignete  $C_1$ - $C_8$ -Aldehyd-Komponenten in den Aminotriazinethern, die durch den Substituent  $R_2$  in der Strukturformel definiert sind, sind Formaldehyd, Acetaldehyd und Trimethylolacetaldehyd.

Die Aminotriazinether als Basis für die Carbamidsäureestergruppen enthaltenden Polyaminotriazinether in den Prepregs lassen sich durch Umsetzung von Aminotriazinen mit  $C_1$ - $C_8$ -Aldehyden zu Aminotriazin-Vorkondensaten, Veretherung der Aminotriazin-Vorkondensate mit  $C_1$ - $C_4$ -Alkoholen, und gegebenenfalls nachfolgende Umetherung mit  $C_5$ - $C_{18}$ -Alkoholen und/oder Diolen vom Typ  $HO-R_4-OH$  herstellen. Durch  $R_3$  wird in der Strukturformel die Veretherungskomponente definiert, die ein  $C_1$ - $C_{18}$ -Alkohol und/oder ein Diol vom Typ  $HO-R_4-OH$  ist.

Beispiele für  $C_1$ - $C_4$ -Alkohole, die als Veretherungskomponente  $R_3$  in den Aminotriazinethern enthalten sein können, sind Methanol, Isopropanol und Butanol.

Beispiele für  $C_5$ - $C_{18}$ -Alkohole, die als Veretherungskomponente  $R_3$  in den Aminotriazinethern enthalten sein können, sind Ethylhexylalkohol, Dodecylalkohol und Stearylalkohol.

Beispiele für Diole vom Typ  $HO-R_4-OH$ ,  $R_4 = C_2$ - $C_{18}$ -Alkylen, die als Veretherungskomponente  $R_3$  in den Aminotriazinethern enthalten sein können, sind Ethylenglycol, Butandiol, Octandiol, Dodecandiol und Octadecandiol.

Beispiele für Diole vom Typ  $HO-R_4-OH$ ,  $R = -[CH_2-CH_2-O-CH_2-CH_2]_n-$  und  $n = 1-200$ , die als Veretherungskomponente  $R_3$  in den Aminotriazinethern enthalten sein können, sind Polyethylenglycole mit Molmassen von 500 bis 5000.

Beispiele für Diole vom Typ  $HO-R_4-OH$ ,  $R_4 = -[CH_2-CH(CH_3)-O-CH_2-CH(CH_3)]_n-$  und  $n = 1-200$ , die als Veretherungskomponente  $R_3$  in den Aminotriazinethern enthalten sein können, sind Polypropylenglycole mit Molmassen von 500 bis 5000.

Beispiele für Diole vom Typ HO-R<sub>4</sub>-OH, R<sub>4</sub> =  $[-O-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2-]_n$  - und n = 1-200, die als Veretherungskomponente R<sub>3</sub> in den Aminotriazinethern enthalten sein können, sind Polytetrahydrofurane mit Molmassen von 500 bis 5000.

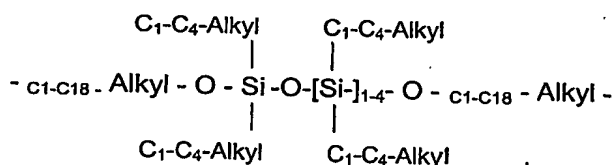
Beispiele für Diole vom Typ HO-R<sub>4</sub>-OH,

R<sub>4</sub> =  $[-[(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_6-C_{14}\text{-Arylen-CO-O-(CH}_2)_{2-8}-]_n]$ , die als Veretherungskomponente R<sub>3</sub> in den Aminotriazinethern enthalten sein können, sind Ester und Polyester auf Basis gesättigter Dicarbonsäuren wie Terephthalsäure, Isophthalsäure oder Naphthalindicarbonsäure und Diolen wie Ethylenglycol, Butandiol, Neopentylglycol und/oder Hexandiol. Als Ester wird Bis(hydroxyethyl)terephthalat bevorzugt.

Beispiele für Diole vom Typ HO-R<sub>4</sub>-OH,

R<sub>4</sub> =  $[-[(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_2-C_{12}\text{-Alkylen-CO-O-(CH}_2)_{2-8}-]_n]$ , die als Veretherungskomponente R<sub>3</sub> in den Aminotriazinethern enthalten sein können, sind Polyester auf Basis gesättigter Dicarbonsäuren wie Adipinsäure und/oder Bernsteinsäure, ungesättigter Dicarbonsäuren wie Maleinsäure, Fumarsäure und/oder Itakonsäure und Diolen wie Ethylenglycol, Butandiol, Neopentylglycol und/oder Hexandiol.

Beispiele für Diole vom Typ HO-R<sub>4</sub>-OH, R<sub>4</sub> = Siloxangruppen enthaltende Sequenzen des Typs

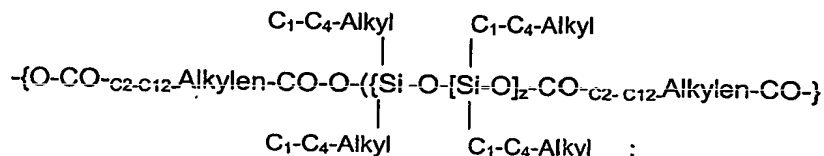
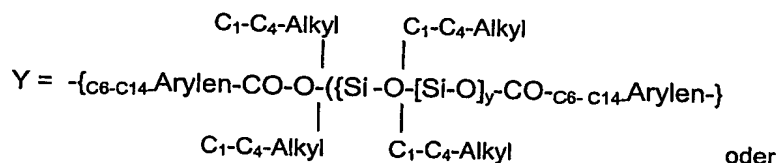


die als Veretherungskomponente R<sub>3</sub> in den Aminotriazinethern enthalten sein können, sind 1,3-Bis(hydroxybutyl)tetramethyldisiloxan und 1,3-Bis(hydroxyoctyl)tetraethyldisiloxan.

Beispiele für Polyestersequenzen mit Siloxangruppen enthaltenden Diolen vom Typ HO-R<sub>4</sub>-OH, R<sub>4</sub> =  $[-[(X)_r-O-CO-(Y)_s-CO-O-(X)_r]-]$ , die als Veretherungskomponente R<sub>3</sub> in den Aminotriazinethern enthalten sein können,

bei denen

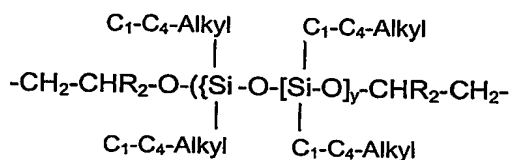
X =  $\{(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_6-C_{14}\text{-Arylen-CO-O-(CH}_2)_{2-8}\}$  oder  
 $\{-(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_2-C_{12}\text{-Alkylen-CO-O-(CH}_2)_{2-8}\};$



$r = 1$  bis  $70$ ;  $s = 1$  bis  $70$  und  $y = 3$  bis  $50$  bedeuten;

sind Hydroxylendgruppen enthaltende Polyester auf Basis aromatischer  $\text{C}_6\text{-C}_{14}$ -Arylen-dicarbonsäuren wie Terephthalsäure oder Naphthalindicarbonsäure, aliphatischer  $\text{C}_2\text{-C}_{12}$ -Alkylen-dicarbonsäuren wie Adipinsäure, Maleinsäure oder Pimelinsäure, Diolen wie Ethylenglycol, Butandiol, Neopentylglycol oder Hexandiol und Siloxanen wie Hexamethyldisiloxan oder  $\alpha,\omega$ -Dihydroxypolydimethylsiloxan.

Beispiele für Siloxangruppen enthaltende Polyetherdiole  $\text{HO-R}_4\text{-OH}$ ,  $\text{R}_4$  = Polyethersequenzen des Typs



wobei  $\text{R}_2 = \text{H}$ ;  $\text{C}_1\text{-C}_4\text{-Alkyl}$  und  $y = 3$  bis  $50$ ;

die als Veretherungskomponente  $\text{R}_3$  in den Aminotriazinethern enthalten sein können, sind Polyetherdiole auf Basis von Siloxanen wie Hexamethyldisiloxan oder  $\alpha,\omega$ -Dihydroxypolydimethylsiloxan und Alkylenoxiden wie Ethylenoxid oder Propylenoxid.

Beispiele für Diole auf Basis von Alkylenoxidaddukten des Melamins vom Typ 2-Amino-4,6-bis(hydroxy- $\text{C}_2\text{-C}_4$ -alkylenamino)-1,3,5-triazin, die als Veretherungskomponente  $\text{R}_3$  in den Aminotriazinethern enthalten sein können, sind Diole auf Basis von Melamin und Ethylenoxid oder Propylenoxid.

Beispiele für Phenoetherdiole auf Basis zweiwertiger Phenole und  $\text{C}_2\text{-C}_8$ -Diolen vom Typ Bis(hydroxy- $\text{C}_2\text{-C}_8$ -Alkylen-O-) $\text{C}_6\text{-C}_{18}$ -Arylen, die als Veretherungskomponente  $\text{R}_3$  in den

Aminotriazinethern enthalten sein können, sind Ethylenoxidaddukte oder Propylenoxidaddukte an Diphenylolpropan.

Neben Diolen als mehrwertige Alkohole können als Veretherungskomponente  $R_3$  in den Aminotriazinethern ebenfalls dreiwertige Alkohole wie Glycerin oder vierwertige Alkohole wie Erythrit oder deren Mischungen mit zweiwertigen Alkoholen enthalten sein.

Ein bevorzugtes Verfahren zur Herstellung von Polyaminotriazinethern mit Molmassen von 300 bis 5000 als Basis für die Carbamidsäureestergruppen enthaltenden Polyaminotriazinether in den Prepregs besteht in der thermischen Selbstkondensation der Aminotriazinether in kontinuierlichen Knetern bei 120 bis 220°C.

In den Prepregs sind die Carbamidsäureestergruppen enthaltenden Polyaminotriazinether bevorzugt Polyaminotriazinether auf Basis von Melamin, Formaldehyd, Methanol und Diisocyanaten des Typs  $R_6$  ( $N = C = O$ )<sub>2</sub>.

Beispiele für Isocyanate der Formel  $R_6$  ( $N = C = O$ )<sub>2</sub> als Isocyanatkomponente in den Carbamidsäureestergruppen enthaltenden Polytriazinethern sind Tetramethyldiisocyanat, Hexamethyldiisocyanat, Decamethyldiisocyanat, Diphenylmethandiisocyanat, p-Toluyldiisocyanat oder Diphenyloxiddiisocyanat.

Als Carbamidsäureestergruppen enthaltende Polyaminotriazinether werden insbesondere Polyaminotriazinether auf Basis von

B) Mischungen aus 5 bis 30 Masse% Aminotriazinethern A) und 95 bis 70 Masse% Polyaminotriazinethern mit Molmassen von 300 bis 5000, wobei die Polyaminotriazinether durch thermische Selbstkondensation von Aminotriazinethern A) gebildet werden,

und

C) Isocyanaten der Formel  $R_6$  ( $N = C = O$ )<sub>2</sub>, wobei  $R_4 = C_4 - C_{18}$ -Alkylen, und/oder  $C_5 - C_8$  - Cycloalkylen, und/oder oligomere Polyester bzw. Polyether mit Isocyanat-Endgruppen und Molmassen von 200 bis 5000,

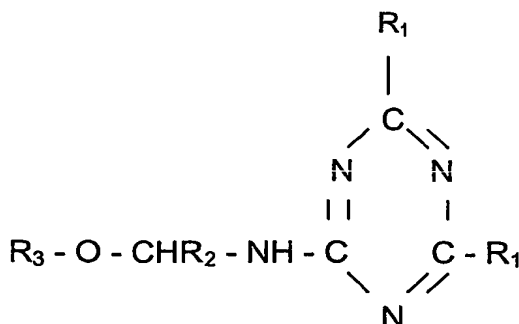
bevorzugt.

Die Prepregs für Faserverbunde hoher Festigkeit und Elastizität werden nach einem Verfahren hergestellt, bei dem erfindungsgemäss Prepregs, die aus 50 bis 85 Masse% textilen Flächengebilden und 15 bis 50 Masse% Carbamidsäureestergruppen enthal-



tenden Polyaminotriazinethern bestehen, nach einem Schmelzeauftragsverfahren hergestellt werden, bei dem Gemische aus

#### A) Aminotriazinethern der Struktur



$R_1 = -NH_2, -NH-CHR_2-OH, -NH-CHR_2-O-R_3, NH-CHR_2-O-R_4-OH, -CH_3, -C_3H_7, -C_6H_5, -OH,$   
 Phthalimido-, Succinimido-,  $-NH-CO-C_5-C_{18}$ -Alkyl-,  $-NH-C_5-C_{18}$ -Alkylen-OH,  
 $-NH-CHR_2-O-C_5-C_{18}$ -Alkylen- $NH_2$ ,  $-NH-C_5-C_{18}$ -Alkylen- $NH_2$ ,

$R_2 = H, C_1-C_7$  - Alkyl;

$R_3 = C_1-C_{18}$  - Alkyl,  $HO-R_4$ ,

$R_4 = -CH(CH_3)-CH_2-O-C_2-C_{12}$ -Alkylen-O- $CH_2-CH(CH_3)-$ ,

$-CH(CH_3)-CH_2-O-C_2-C_{12}$ -Arylen-O- $CH_2-CH(CH_3)-$ ,

$-[CH_2-CH_2-O-CH_2-CH_2]_n-$ ,  $-[CH_2-CH(CH_3)-O-CH_2-CH(CH_3)]_n-$ ,  $-[O-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2]_n-$ ,

$-[(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_6-C_{14}$ -Arylen-CO-O- $(CH_2)_{2-8}]_n-$ ,

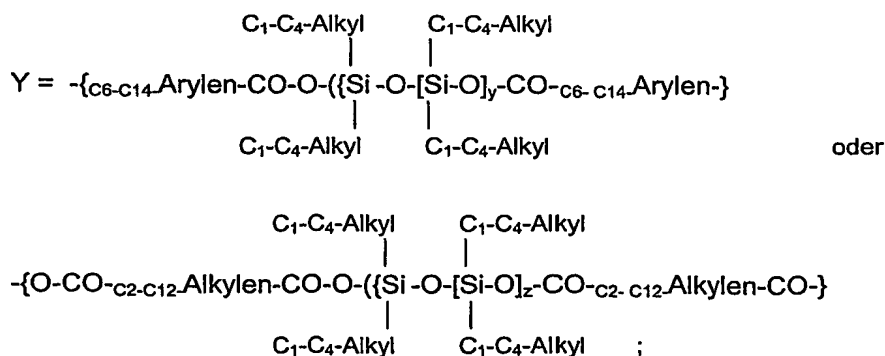
$-[(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_2-C_{12}$ -Alkylen-CO-O- $(CH_2)_{2-8}]_n-$ ,

wobei  $n = 1$  bis 200;

- Siloxangruppen enthaltende Polyestersequenzen des Typs  $-[(X)_r-O-CO-(Y)_s-CO-O-(X)_t]-$ ,  
 bei denen

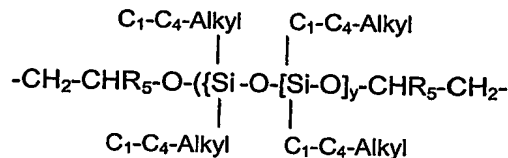
$X = \{(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_6-C_{14}$ -Arylen-CO-O- $(CH_2)_{2-8}\}$  oder

$\{(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_2-C_{12}$ -Alkylen-CO-O- $(CH_2)_{2-8}\}$ ;



$r = 1$  bis 70;  $s = 1$  bis 70 und  $y = 3$  bis 50 bedeuten;

- Siloxangruppen enthaltende Polyethersequenzen des Typs



wobei  $R_5 = \text{H}$ ;  $\text{C}_1\text{-C}_4\text{-Alkyl}$  und  $y = 3$  bis 50 bedeuten;

- Sequenzen auf Basis von Alkylenoxidaddukten des Melamins vom Typ  
2-Amino-4,6-di- $\text{C}_2\text{-C}_4$ -alkylenamino-1,3,5-triazin - Sequenzen:

- Phenolethersequenzen auf Basis zweiwertiger Phenole und  $\text{C}_2\text{-C}_8$ -Diolen vom Typ  
 $\text{-C}_2\text{-C}_8\text{-Alkyl-O-C}_6\text{-C}_{18}\text{-Arylen-O-C}_2\text{-C}_8\text{-Alkyl-}$  Sequenzen;

und/oder

B) Mischungen aus 10 bis 90 Masse% Aminotriazinethern A) und 90 bis 10 Masse% Polyaminotriazinethern mit Molmassen von 300 bis 5000, wobei die Polyaminotriazinether durch thermische Selbstkondensation von Aminotriazinethern A) gebildet werden,

und

C) Isocyanaten der Formel  $R_6 (\text{N} = \text{C} = \text{O})_2$ ,

wobei  $R_6 = \text{C}_6\text{-C}_{14}\text{-Arylen}$ ,  $\text{C}_4\text{-C}_{18}\text{-Alkyl}$ , und/oder  $\text{C}_5\text{-C}_8\text{-Cycloalkyl}$ , und/oder oligomere Polyester bzw. Polyether mit Isocyanat- Endgruppen und Molmassen von 200 bis 5000,

wobei das Molverhältnis Diisocyanat / Summe Iminogruppen und Aminogruppen in der Triazinsequenz 0,15 : 1 bis 0,65 : 1 beträgt,

und

wobei die Mischungen 0,05 bis 2 Masse%, bezogen auf die Aminotriazinether, latente Härter enthalten können,

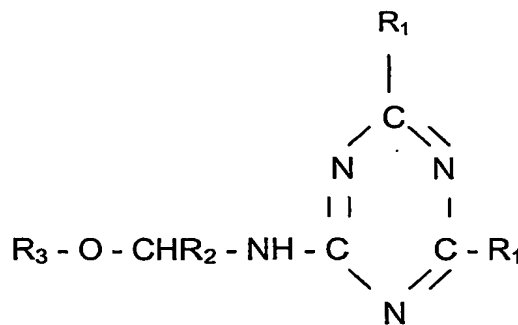
bei Temperaturen von 85 bis 130°C aufgeschmolzen, umgesetzt und auf die textilen Trägermaterialien aufgebracht werden.

Mischungen, die überwiegend aus Aminotriazinethern und Diisocyanaten bestehen, lassen sich beim Schmelzauftragsverfahren durch Rakeln oder Aufsprühen der niederviscosen Schmelze auf die bewegte Flächenbahn aufbringen.

Extrusionsbeschichtungsanlagen sind beim Schmelzeauftragsverfahren zum Aufschmelzen und Aufbringen von höherviscosen Mischungen, die überwiegend aus Polyaminotriazinethern und Diisocyanaten bestehen, geeignet.

Ein zweites Verfahren zur Herstellung von Prepregs für Faserverbunde hoher Festigkeit und Elastizität besteht darin, dass erfindungsgemäss Prepregs, die aus 50 bis 85 Masse% textilen Flächengebilden und 15 bis 50 Masse% Carbamidsäureestergruppen enthaltenden Polyaminotriazinethern bestehen, nach einem Flüssigauftragsverfahren hergestellt werden, bei dem Dispersionen in C<sub>5</sub>-C<sub>12</sub>-Kohlenwasserstoffen und/oder C<sub>3</sub>-C<sub>12</sub>-Ketonen oder Lösungen in Dimethylsulfoxid, Dimethylformamid und/oder Dimethylacetamid mit einem Feststoffgehalt von 25 bis 70 Masse% aus

#### A) Aminotriazinethern der Struktur



R<sub>1</sub> = -NH<sub>2</sub>, -NH-CHR<sub>2</sub>-OH, -NH-CHR<sub>2</sub>-O-R<sub>3</sub>, NH-CHR<sub>2</sub>-O-R<sub>4</sub>-OH, -CH<sub>3</sub>, -C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>, -C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>, -OH, Phthalimido-, Succinimido-, -NH-CO-C<sub>5</sub>-C<sub>18</sub>-Alkyl-, -NH-C<sub>5</sub>-C<sub>18</sub>-Alkylen-OH, -NH-CHR<sub>2</sub>-O-C<sub>5</sub>-C<sub>18</sub>-Alkylen-NH<sub>2</sub>, -NH-C<sub>5</sub>-C<sub>18</sub>-Alkylen-NH<sub>2</sub>,

R<sub>2</sub> = H, C<sub>1</sub>-C<sub>7</sub> - Alkyl;

R<sub>3</sub> = C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub> - Alkyl, HO-R<sub>4</sub>-,

R<sub>4</sub> = -CH(CH<sub>3</sub>)-CH<sub>2</sub>-O-C<sub>2</sub>-C<sub>12</sub>-Alkylen-O-CH<sub>2</sub>-CH(CH<sub>3</sub>)-,

-CH(CH<sub>3</sub>)-CH<sub>2</sub>-O-C<sub>2</sub>-C<sub>12</sub>-Arylen-O-CH<sub>2</sub>-CH(CH<sub>3</sub>)-,

-[CH<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>-O-CH<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>]<sub>n</sub>-, -[CH<sub>2</sub>-CH(CH<sub>3</sub>)-O-CH<sub>2</sub>-CH(CH<sub>3</sub>)]<sub>n</sub>-, -[O-CH<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>]<sub>n</sub>-,

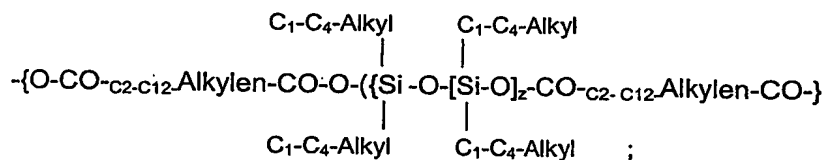
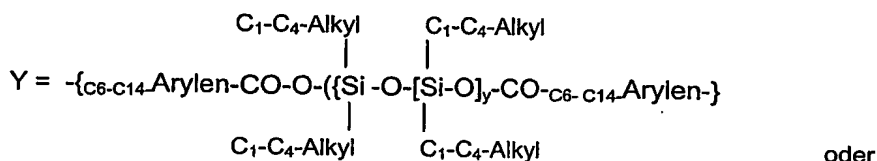
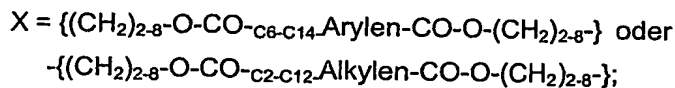
-[(CH<sub>2</sub>)<sub>2-8</sub>-O-CO-C<sub>6</sub>-C<sub>14</sub>-Arylen-CO-O-(CH<sub>2</sub>)<sub>2-8</sub>]<sub>n</sub>-,

-[(CH<sub>2</sub>)<sub>2-8</sub>-O-CO-C<sub>2</sub>-C<sub>12</sub>-Alkylen-CO-O-(CH<sub>2</sub>)<sub>2-8</sub>]<sub>n</sub>-,

wobei n = 1 bis 200;

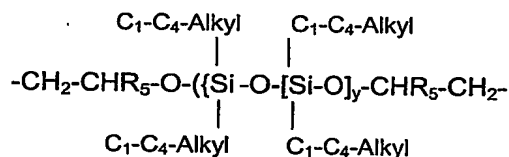
- Siloxangruppen enthaltende Polyestersequenzen des Typs -[(X)<sub>r</sub>-O-CO-(Y)<sub>s</sub>-CO-O-(X)<sub>i</sub>]- ,

bei denen



$r = 1$  bis  $70$ ;  $s = 1$  bis  $70$  und  $y = 3$  bis  $50$  bedeuten;

- Siloxangruppen enthaltende Polyethersequenzen des Typs



wobei  $R_5 = \text{H}$ ;  $\text{C}_1-\text{C}_4\text{-Alkyl}$  und  $y = 3$  bis  $50$  bedeuten;

- Sequenzen auf Basis von Alkylenoxidaddukten des Melamins vom Typ

2-Amino-4,6-di- $\text{C}_2-\text{C}_4$ -alkylenamino-1,3,5-triazin - Sequenzen:

- Phenoethersequenzen auf Basis zweiwertiger Phenole und  $\text{C}_2-\text{C}_8$ -Diolen vom Typ  
- $\text{C}_2-\text{C}_8$ -Alkylen-O- $\text{C}_6-\text{C}_{18}$ -Arylen-O- $\text{C}_2-\text{C}_8$ -Alkylen- Sequenzen;

und/oder

B) Mischungen aus 10 bis 90 Masse% Aminotriazinethern A) und 90 bis 10 Masse% Polyaminotriazinethern mit Molmassen von 300 bis 5000, wobei die Polyaminotriazinether durch Selbstkondensation von Triazinethern A) gebildet werden, und

C) Isocyanaten der Formel  $R_6 (\text{N}=\text{C}=\text{O})_2$ ,

wobei  $R_6 = \text{C}_6-\text{C}_{14}$ -Arylen,  $\text{C}_4-\text{C}_{18}$ -Alkylen, und/oder  $\text{C}_5-\text{C}_8$ -Cycloalkylen, und/oder oligomere Polyester bzw. Polyether mit Isocyanat-Endgruppen und Molmassen von 200 bis 5000,

wobei das Molverhältnis Diisocyanat / Summe Iminogruppen und Aminogruppen in der Triazinsequenz 0,15 : 1 bis 0,65 : 1 beträgt, und  
wobei die Mischungen 0,05 bis 2 Masse%, bezogen auf die Aminotriazinether, latente Härter enthalten können,

bei Temperaturen von 5 bis 80°C in Kontakt mit den textilen Trägermaterialien gebracht und bei 80 bis 120°C/0,1 bis 1 bar umgesetzt und getrocknet werden.

Beispiele für C<sub>5</sub>-C<sub>12</sub>-Kohlenwasserstoffe, die als Dispersionsmittel beim Flüssigauftragsverfahren eingesetzt werden können, sind Pentan, Isooctan und Dodecan.

Beispiele für C<sub>3</sub>-C<sub>12</sub>-Ketone, die als Dispersionsmittel beim Flüssigauftragsverfahren eingesetzt werden können, sind Methylethylketon, Diisobutylketon und Ethylhexylketon.

Beim Schmelzeauftragsverfahren und beim Flüssigauftragsverfahren zur Herstellung von Prepregs wird als Aminotriazinether bevorzugt 2,4,6-Tris(methoxymethylamino)-1,3,5-triazin eingesetzt.

Beim Schmelzeauftragsverfahren und beim Flüssigauftragsverfahren zur Herstellung von Prepregs werden als latente Härter bevorzugt schwache Säuren, insbesondere

- blockierte Sulfonsäuren,
- Alkalisalze oder Ammoniumsalze der Phosphorsäure,
- C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Alkylester oder C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-Hydroxyalkylester von C<sub>6</sub>-C<sub>14</sub>-aromatischen Carbonsäuren/oder anorganischen Säuren,
- Salze von Melamin oder Guanaminen mit C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-aliphatischen Carbonsäuren,
- Anhydride, Halbester oder Halbamide von C<sub>4</sub>-C<sub>20</sub>-Dicarbonsäuren,
- Halbester oder Halbamide von Copolymeren aus ethylenisch ungesättigten C<sub>4</sub>-C<sub>20</sub>-Dicarbonsäureanhydriden und ethylenisch ungesättigten Monomeren vom Typ C<sub>2</sub>-C<sub>20</sub>-Olefine und/oder C<sub>8</sub>-C<sub>20</sub>-Vinylaromaten, und/oder
- Salze von C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Alkylaminen bzw. Alkanolaminen mit C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-aliphatischen, C<sub>6</sub>-C<sub>14</sub>-aromatischen oder alkylaromatischen Carbonsäuren sowie anorganischen Säuren vom Typ Salzsäure, Schwefelsäure oder Phosphorsäure, eingesetzt.

Beispiele für blockierte Sulfonsäuren, die als latente Härter bei der Herstellung der Prepregs eingesetzt werden können, sind Benzilmonoximtosylat,  $\alpha$ -Cyclohexylsulfonyloxyiminophenylelessigsäureethylester, Acetonoxim-p-benzoylbenzolsulfonat,  $\alpha$ -(4-Nitrobenzol-sulfonyloxyimino)benzylcyanid, 2-Nitrobenzylsulfonat und 2-Methylsulfonyl-oxyimino-4-phenyl-but-3-enitril.

Beispiele für aliphatische  $C_4$ - $C_{18}$ -Carbonsäuren, die als latente Härter bei der Herstellung der Prepregs eingesetzt werden können, sind Buttersäure, Capronsäure, Palmitinsäure, Stearinsäure und Ölsäure.

Beispiele für Alkalisalze oder Ammoniumsalze der Phosphorsäure, die als latente Härter bei der Herstellung der Prepregs eingesetzt werden können, sind Ammoniumhydrogenphosphat, Natriumpolyphosphat und Kaliumhydrogenphosphat.

Beispiele für  $C_1$ - $C_{12}$ -Alkylester oder  $C_2$ - $C_8$ -Hydroxyalkylester von  $C_6$ - $C_{14}$ -aromatischen Carbonsäuren oder anorganischen Säuren, die als latente Härter bei der Herstellung der Prepregs eingesetzt werden können, sind Dibutylphthalat, Phthalsäurediglycolester und/oder Trimellithsäureglycolester.

Beispiele für Salze von Melamin oder Guanaminen mit  $C_{1-18}$ -aliphatischen Carbonsäuren, die als latente Härter bei der Herstellung der Prepregs eingesetzt werden können, sind Melaminformiat, Melamincitrat und/oder Acetoguanaminbutyrat.

Beispiele für Anhydride, Halbester oder Halbamide von  $C_4$ - $C_{20}$ -Dicarbonsäuren, die als latente Härter bei der Herstellung der Prepregs eingesetzt werden können, sind Maleinsäureanhydrid, Mono- $C_1$ - $C_{18}$ -alkylmaleate wie Maleinsäuremonobutylester, Maleinsäuremonoethylhexylester oder Monostearylmalat oder Maleinsäuremono- $C_1$ - $C_{18}$ -alkylamide wie Maleinsäuremonoethylamid, Maleinsäuremonooctylamid oder Maleinsäuremonostearylamid.

Beispiele für Halbester oder Halbamide von Copolymeren aus ethylenisch ungesättigten  $C_4$ - $C_{20}$ -Dicarbonsäureanhydriden und ethylenisch ungesättigten Monomeren vom Typ  $C_2$ - $C_{20}$ -Olefine und/oder  $C_8$ - $C_{20}$ -Vinylaromaten, die als latente Härter bei der Herstellung der Prepregs eingesetzt werden können, sind Halbester oder Halbamide von Copolymeren aus Maleinsäureanhydrid und  $C_3$ - $C_8$ - $\alpha$ -Olefinen vom Typ Isobuten, Diisobuten und/oder 4-

Methylpenten und/oder Styren mit einem Molverhältnis Maleinsäureanhydrid/C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>- $\alpha$ -Olefin bzw. Styren bzw. entsprechender Monomermischungen von 1 : 1 bis 1 : 5.

Beispiele für Salze von C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Alkylaminen bzw. Alkanolaminen mit C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-aliphatischen, C<sub>6</sub>-C<sub>14</sub>-aromatischen oder alkylaromatischen Carbonsäuren sowie anorganischen Säuren vom Typ Salzsäure, Schwefelsäure oder Phosphorsäure, die als latente Härter bei der Herstellung der Prepregs eingesetzt werden können, sind Ethanolammoniumchlorid, Triethylammoniummaleat, Diethanolammoniumphosphat und/oder Isopropylammonium-p-toluolsulfonat.

Erfindungsgemäss sind weiterhin Faserverbunde, die unter Verwendung der vorbeschriebenen Prepregs hergestellt werden.

Für die Herstellung der Faserverbunde können die Prepregs, die aus 50 bis 85 Masse% textilen Flächengebilden und 15 bis 50 Masse% Carbamidsäureestergruppen enthaltenden Polyaminotriazinethern bestehen, bei Temperaturen von 135°C bis 190°C und Verweilzeiten von 4 bis 90 min einlagig, oder mehrlagig bevorzugt in Pressen bei 40 bis 120 bar, ausgehärtet werden.

Die Aushärtung der Prepregs bei Temperaturen von 135°C bis 190°C und Verweilzeiten von 4 bis 90 min kann ebenfalls nach Laminierung der Prepregs, die aus 50 bis 85 Masse% textilen Flächengebilden und 15 bis 50 Masse% Carbamidsäureestergruppen enthaltenden Polyaminotriazinethern bestehen, mit flächige Trägermaterialien aus Holz, Metall, Kunststoffen, Papier, Pappe, textilen Flächengebilden oder Prepregs auf Basis von Trägermaterialien wie textilen Flächengebilden oder Papier, die mit Laminierharzen wie Epoxidharzen, Phenolharzen oder ungesättigten Polyesterharzen imprägniert sind, bevorzugt in Pressen unter Formgebung bei 40 bis 120 bar, erfolgen.

Beispiele für flächige Trägermaterialien, die bei der Herstellung von Faserverbunden durch Laminierung mit Prepregs aus 50 bis 85 Masse% textilen Flächengebilden und 15 bis 50 Masse% Carbamidsäureestergruppen enthaltenden Polyaminotriazinethern eingesetzt werden können, sind Kupferfolien, Kraftpapier-Prepregs, Polystyrenschaum, Polyolefinschaum, Metallnetze und Phenolharz-Glasfaser-Prepregs.

Die erfindungsgemässen Faserverbunde sind bevorzugt für den Einsatz als Hitzeschutzkleidung, Brandschutzdecken, Elektroisolationspapiere, flammfeste Bauelemente in der Elektronik, Baukonstruktionsteile und Fahrzeugausrüstungen geeignet.

Die Erfindung wird durch nachfolgende Beispiele erläutert:

#### Beispiel 1

##### 1.1 Herstellung der Mischung aus Aminotriazinether und Polyaminotriazinether

In einem 30 l Rührautoklav wird durch Eintragen von 1,0 kg Melamin in 13,7 kg Methanol bei 95°C eine Melamindispersion hergestellt, und nach Einstellung eines pH-Wertes von 6 in den Rührautoklav als Aldehydkomponente eine Mischung aus 3 kg Formaldehyd, 1,29 kg Methanol und 4,31 kg Wasser, die auf 90°C vortemperiert ist, unter Druck dosiert, und das Reaktionsgemisch bei einer Reaktionstemperatur von 95°C und einer Reaktionszeit von 5 min umgesetzt.

Nach Abkühlung auf 65°C wird durch Zugabe von n/10 Natronlauge ein pH-Wert von 9 eingestellt, und das im Wasser-Methanol-Gemisch gelöste veretherte Aminotriazinharzkondensat wird nach Zugabe von 2,23 kg Butanol in einen ersten Vacuumverdampfer überführt, in dem die Lösung des veretherten Aminotriazinharzkondensats bei 80°C zu einer hochkonzentrierten Aminotriazinharzlösung, die einen Feststoffanteil von 75 Masse% und einen Gehalt an Butanol von 10 Masse% besitzt, eingeeengt wird.

Nachfolgend wird die hochkonzentrierte Lösung des veretherten Aminotriazinharzes in einen zweiten Vacuumverdampfer überführt und bei 90°C zu einer sirupösen Schmelze eingeeengt, die einen Feststoffanteil von 95 Masse% und einen Gehalt an Butanol von 5 Masse% besitzt.

##### 1.2 Herstellung des Prepregs und Verpressung zum Faserverbund

Die sirupöse Schmelze wird mit 2,6 kg/h in den Einzugstrichter eines Laborextruders GL 27 D44 (Leistritz) mit Vacuumentgasungszonen nach der Einzugszone sowie vor dem Produktaustrag, Seitenstromdosierung für flüssige Medien und Breitschlitzdüse 100 x 2 mm, Temperaturprofil 180°C/220°C/220°C/220°C/200°C/170°C/140°C/110°C/90°C/90°C/



90°C, Extruderdrehzahl  $200 \text{ min}^{-1}$ , dosiert, der Aminotriazinether thermisch kondensiert und die flüchtigen Anteile bei 100 mbar entgast.

Die dem Vacuumentgasungsstutzen entnommene Analysenprobe an Aminotriazinether/Polyaminotriazinether – Gemisch besitzt eine Molmasse von 650.

In die Schmelze des Polyaminotriazinether/Aminotriazinether-Gemischs wird über eine Seitenstromdosierung mit 2,25 kg/h Hexamethylendiisocyanat dosiert und mit dem Gemisch homogenisiert. Nach einer zweiten Vacuumentgasung mit 150 mbar wird die Schmelze durch die Breitschlitzdüse auf ein mit 5 m/min bewegtes Glasfasergewebe (Flächenmasse  $200 \text{ g/m}^2$ ) ausgetragen, das nach der Imprägnierung einen Heiztunnel ( $120^\circ\text{C}$ , mittlere Verweilzeit 8 min) durchläuft.

Das imprägnierte Glasfasergewebe besitzt einen Harzanteil von 44 Masse%. ATR-Untersuchungen ergeben ein Verhältnis Triazinsegment/Carbaminsäureestergruppen von 1 : 2,6.

Das imprägnierte Glasfasergewebe wird in einer Presse bei  $160^\circ\text{C}/30 \text{ bar}$  20 min unter Aushärtung verpresst.

Das Laminat besitzt folgende Werkstoffkennwerte :

Biegefestigkeit:	$320 \text{ N/mm}^2$	Schlagzähigkeit:	$78 \text{ kJ/m}^2$
Zugfestigkeit:	$180 \text{ N/mm}^2$	Dehnung:	3%.

Wird ein Laminat gleichen Harzanteils unter analogen Bedingungen, aber ohne Zusatz des Diisocyanats, hergestellt, so ergeben sich folgende Werkstoffkennwerte :

Biegefestigkeit:	$290 \text{ N/mm}^2$	Schlagzähigkeit:	$52 \text{ kJ/m}^2$
Zugfestigkeit:	$168 \text{ N/mm}^2$	Dehnung:	2,2%.

## Beispiel 2

### 2.1 Herstellung des Aminotriazinethers

In einem 30 l Rührautoklav wird durch Eintragen von 0,9 kg Melamin und 0,1 kg Benzoguanamin in 15 kg Methanol bei  $95^\circ\text{C}$  eine Aminotriazinindispersion hergestellt, und nach Einstellung eines pH-Wertes von 6,2 in den Rührautoklav als Aldehydkomponente eine Mischung aus 2,7 kg Formaldehyd, 0,3 kg Glyoxal und 3 kg Wasser, die auf  $90^\circ\text{C}$

vortemperiert ist, unter Druck dosiert, und das Reaktionsgemisch bei einer Reaktionstemperatur von 90°C und einer Reaktionszeit von 10 min umgesetzt.

Nach Abkühlung auf 65°C wird durch Zugabe von n/10 Natronlauge ein pH-Wert von 9,2 eingestellt, und das im Wasser-Methanol-Gemisch gelöste veretherte Aminotriazinharz-kondensat wird nach Zugabe von 0,6 kg Butanol in einen ersten Vacuumverdampfer überführt, in dem die Lösung des veretherten Aminotriazinharzkondensats bei 80°C zu einer hochkonzentrierten Aminotriazinharzlösung, die einen Feststoffanteil von 76 Masse% und einen Gehalt an Butanol von 3,1 Masse% besitzt, eingeeengt wird.

Nachfolgend wird die hochkonzentrierte Lösung des veretherten Aminotriazinharzes in einer Mischstrecke mit 0,8 kg Simulsol BPLE (Oligoethylenglycolether von Bisphenol A) gemischt, in einen zweiten Vacuumverdampfer überführt und bei 90°C zu einer sirupösen Schmelze eingeeengt, die einen Feststoffanteil von 98 Masse% und einen Gehalt an Butanol von 2,2 Masse% besitzt.

## 2.2 Herstellung des Prepregs und Verpressung zum Faserverbund

Die sirupöse Schmelze wird mit 2,8 kg/h in den Einzugsstrichter eines Laborextruders GL 27 D44 (Leistritz) mit Vacuumentgasungszonen nach der Einzugszone sowie vor dem Produktaustrag, Seitenstromdosierung für flüssige Medien und Breitschlitzdüse 100 x 2 mm, Temperaturprofil 180°C/220°C/220°C/220°C/200°C/170°C/140°C/110°C/90°C/90°C/90°C, Extruderdrehzahl 200 min<sup>-1</sup>, dosiert, der Aminotriazinether thermisch kondensiert und die flüchtigen Anteile bei 100 mbar entgast.

Die aus dem Vacuumentgasungsstutzen entnommene Analysenprobe an Aminotriazinether/Polyaminotriazinether – Gemisch besitzt eine Molmasse von 3800.

In die Schmelze des Aminotriazinether/Polyaminotriazinether-Gemischs wird über eine Seitenstromdosierung mit 1,9 kg/h Tetramethyldiisocyanat dosiert und mit dem Gemisch homogenisiert. Nach einer zweiten Vacuumentgasung mit 150 mbar wird die Schmelze durch die Breitschlitzdüse auf ein mit 3,5 m/min bewegtes Glasfasergewebe (Flächenmasse 200 g/m<sup>2</sup>) ausgetragen, das nach der Imprägnierung einen Heiztunnel (120°C, mittlere Verweilzeit 8 min) durchläuft.

Das imprägnierte Glasfasergewebe besitzt einen Harzanteil von 50 Masse%. ATR-Untersuchungen des Prepregs ergeben ein Verhältnis Triazinsequenz/Carbaminsäureestergruppen von 1 : 3,7.

Das imprägnierte Glasfasergewebe wird in einer Presse bei 160°C/30 bar 20 min unter Aushärtung verpresst.

Das Laminat besitzt folgende Werkstoffkennwerte :

Biegefestigkeit:	330 N/mm <sup>2</sup>	Schlagzähigkeit:	74 kJ/m <sup>2</sup>
Zugfestigkeit:	188 N/mm <sup>2</sup>	Dehnung:	2,8%.

Wird ein Laminat gleichen Harzanteils unter analogen Bedingungen, aber ohne Zusatz des Diisocyanats, hergestellt, so ergeben sich folgende Werkstoffkennwerte :

Biegefestigkeit:	295 N/mm <sup>2</sup>	Schlagzähigkeit:	50 kJ/m <sup>2</sup>
Zugfestigkeit:	175 N/mm <sup>2</sup>	Dehnung:	2,0%.

### Beispiel 3

Für die Herstellung des Prepregs wird als Aminotriazinether 2,4,6-Tris(methoxymethylamino)-1,3,5-triazin, als Diolkomponente für die Umetherung Bis(hydroxyethyl)-terephthalat und als Diisocyanat Diphenyloxiddiisocyanat eingesetzt.

Die Umetherung und thermische Selbstkondensation des Aminotriazinethers wird im Messknetzer (Fa. Haake Polyabsystem 540p) durchgeführt. Nach Vorheizen auf 170°C werden in die Knetkammer 32,5 g Bis(hydroxyethyl)terephthalat und 39,5 g 2,4,6-Tris(methoxymethylamino)-1,3,5-triazin dosiert und bei einer Drehzahl von 50 min<sup>-1</sup> geknetet, bis nach einer Reaktionszeit von 6 min ein Drehmoment von 3 Nm erreicht ist. Nach Abkühlen wird das Gemisch aus Aminotriazinether und Polyaminotriazinether in einer Universal-Mühle 100 UPZ/II (Alpine Hosokawa) mit Schlagscheibe und 2 mm Sieb gemahlen. GPC-Untersuchungen ergeben eine Molmasse von 1650.

50 g des Gemischs aus Aminotriazinether und Polyaminotriazinether werden in 200 ml Dimethylsulfoxid bei 110°C gelöst und der Lösung nach Abkühlung auf 50°C 68 g Diphenyloxiddiisocyanat und 2 g Dibutylphthalat zugesetzt und die Mischung homogenisiert.

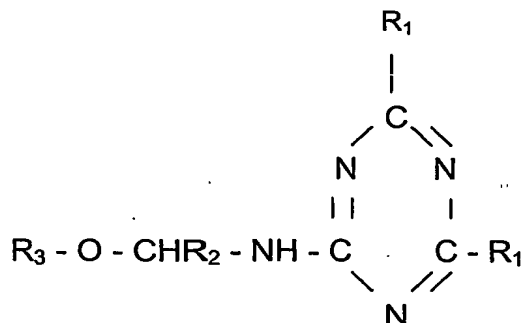
Die viscose Lösung wird mit einer Rakel auf eine Cellulosevliesbahn ( $120\text{g/m}^2$ , Lenzing AG, Österreich) aufgetragen, und das imprägnierte Cellulosevlies in einem Nadelleistenrahmen fixiert und in einem Vacuumtrockenschrank 5 Std. bei  $115^\circ\text{C}/0,1\text{ bar}$  getrocknet. Das so hergestellten Prepreg besitzen einen Harzauftrag von ca. 50%. ATR-Untersuchungen des Prepregs ergeben ein Verhältnis Triazinsequenz/Carbamidsäure-estergruppen von 1 : 3.

Die Prepregs werden auf eine Größe von  $30\times 20\text{ cm}$  zugeschnitten. Zur Herstellung eines Formteils mit gebogenen Kanten im Sinne eines U-Profils werden 3 Prepregs plus ein unbehandeltes Cellulosevlies als Oberseite übereinander in eine auf  $160^\circ\text{C}$  vorgeheizte Pressform ( $30\times 20\text{cm}$ ) gelegt und die Presse langsam zugefahren, wobei sich die nicht ausgehärteten Prepregs leicht verformen lassen. Unter einem Druck von 160 bar wird die Temperatur auf  $180^\circ\text{C}$  erhöht und 20 min gepresst. Das fertige Werkstück wird entnommen, langsam abgekühlt, und der durch austretendes Harz an der Tauchkante des Presswerkzeuges entstandene Grat abgeschliffen.

Aus dem Werkstück herausgefräste Probekörper besitzen im Biegeversuch ein E-Modul von 6,5 GPa, eine Dehnung bei Maximalkraft von 3,2% und eine Schlagzähigkeit von  $13\text{ kJ/m}^2$ .

## Patentansprüche

1. Prepregs für Faserverbunde hoher Festigkeit und Elastizität, dadurch gekennzeichnet, dass die Prepregs aus 50 bis 85 Masse% textilen Flächegebilden und 15 bis 50 Masse% Carbamidsäureesterguppen enthaltenden Polyaminotriazinethern auf Basis von A) Aminotriazinethern der Struktur



$R_1 = -NH_2, -NH-CHR_2-OH, -NH-CHR_2-O-R_3, NH-CHR_2-O-R_4-OH, -CH_3, -C_3H_7, -C_6H_5, -OH,$   
 Phthalimido-, Succinimido-,  $-NH-CO-C_5-C_{18}-\text{Alkyl}, -NH-C_5-C_{18}-\text{Alkylen-OH},$   
 $-NH-CHR_2-O-C_5-C_{18}-\text{Alkylen-NH}_2, -NH-C_5-C_{18}-\text{Alkylen-NH}_2,$

$R_2 = H, C_1-C_7 - \text{Alkyl};$

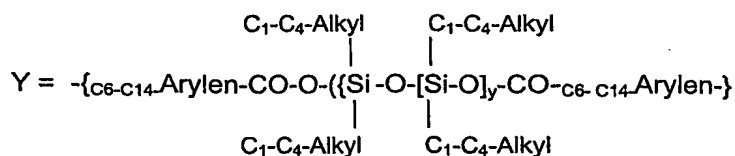
$R_3 = C_1-C_{18} - \text{Alkyl}, HO-R_4-,$

$R_4 = -CH(CH_3)-CH_2-O-C_2-C_{12}-\text{Alkylen-O-CH}_2-CH(CH_3)-,$   
 $-CH(CH_3)-CH_2-O-C_2-C_{12}-\text{Arylen-O-CH}_2-CH(CH_3)-,$   
 $-(CH_2-CH_2-O-CH_2-CH_2)_n-, -[CH_2-CH(CH_3)-O-CH_2-CH(CH_3)]_n-, -[O-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2]_n-,$   
 $-[(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_6-C_{14}-\text{Arylen-CO-O-}(CH_2)_{2-8}]_n-,$   
 $-[(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_2-C_{12}-\text{Alkylen-CO-O-}(CH_2)_{2-8}]_n-,$

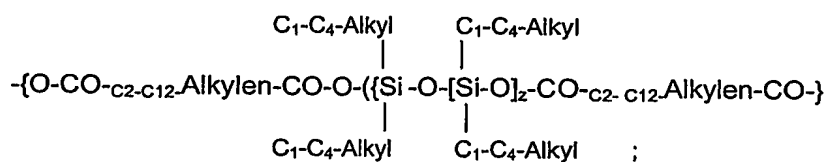
wobei  $n = 1$  bis 200;

- Siloxangruppen enthaltende Polyestersequenzen des Typs  $-[(X)_r-O-CO-(Y)_s-CO-O-(X)]_t-$ ,  
 bei denen

$X = \{(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_6-C_{14}-\text{Arylen-CO-O-}(CH_2)_{2-8}\}$  oder  
 $-[(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_2-C_{12}-\text{Alkylen-CO-O-}(CH_2)_{2-8}];$

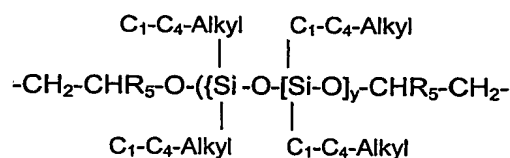


oder



r = 1 bis 70; s = 1 bis 70 und y = 3 bis 50 bedeuten;

- Siloxangruppen enthaltende Polyethersequenzen des Typs



wobei R<sub>5</sub> = H; C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl und y = 3 bis 50 bedeuten;

- Sequenzen auf Basis von Alkylenoxidaddukten des Melamins vom Typ  
2-Amino-4,6-di-C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-alkylenamino-1,3,5-triazin - Sequenzen:

- Phenolethersequenzen auf Basis zweiwertiger Phenole und C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-Diolen vom Typ  
-C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-Alkylen-O-C<sub>6</sub>-C<sub>18</sub>-Arylen-O-C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-Alkylen- Sequenzen;

und/oder

B) Mischungen aus 10 bis 90 Masse% Aminotriazinethern A) und 90 bis 10 Masse% Polyaminotriazinethern mit Molmassen von 300 bis 5000, wobei die Polyaminotriazinether durch thermische Selbstkondensation von Aminotriazinethern A) gebildet werden,  
und

C) Isocyanaten der Formel R<sub>6</sub> (N = C = O)<sub>2</sub>,

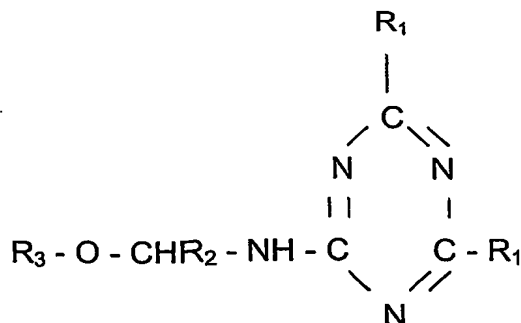
wobei R<sub>6</sub> = C<sub>6</sub>-C<sub>14</sub>-Arylen, C<sub>4</sub> - C<sub>18</sub>-Alkylen, und/oder C<sub>5</sub> - C<sub>8</sub> - Cycloalkylen, und/oder oligomere Polyester bzw. Polyether mit Isocyanat- Endgruppen und Molmassen von 200 bis 5000,

sind, wobei das Molverhältnis Triazinsegment / Carbamidsäureestergruppen 1 : 1 bis 1 : 4 beträgt.

2. Prepregs nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die textilen Trägermaterialien Gewebe oder Vliesse, bevorzugt Gewebe oder Vliesse aus Glasfasern, Kohlenstofffasern, Polyamidfasern, Polyesterfasern, Polypropylenfasern und/oder Duroplastfasern sind.

3. Prepregs nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass in den Carbamidsäure-estergruppen enthaltenden Polyaminotriazinethern das Verhältnis Aldehydkomponente / Triazinkomponente 1 : 1 bis 3 : 1 ist.
4. Prepregs nach mindestens einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Carbamidsäure-estergruppen enthaltenden Polyaminotriazinether auf Basis von Melamin, Formaldehyd, Methanol und Diisocyanaten des Typs  $R_6 (N = C = O)_2$  sind.
5. Prepregs nach mindestens einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Carbamidsäure-estergruppen enthaltenden Polyaminotriazinethern auf Basis von
  - B) Mischungen aus 5 bis 30 Masse% Aminotriazinethern A) und 95 bis 70 Masse% Polyaminotriazinethern mit Molmassen von 300 bis 5000, wobei die Polyaminotriazinether durch thermische Selbstkondensation von Aminotriazinethern A) gebildet werden, und
  - C) Isocyanaten der Formel  $R_6 (N = C = O)_2$ , wobei  $R_4 = C_4 - C_{18}$ -Alkylen, und/oder  $C_5 - C_8$  - Cycloalkylen, und/oder oligomere Polyester bzw. Polyether mit Isocyanat-Endgruppen und Molmassen von 200 bis 5000, sind.
6. Verfahren zur Herstellung von Prepregs für Faserverbunde hoher Festigkeit und Elastizität, dadurch gekennzeichnet, dass Prepregs, die aus 50 bis 85 Masse% textilen Flächengebilden und 15 bis 50 Masse% Carbamidsäureestergruppen enthaltenden Polyaminotriazinethern bestehen, nach einem Schmelzauftragsverfahren hergestellt werden, bei dem Gemische aus

A) Aminotriazinethern der Struktur



$R_1 = -NH_2, -NH-CHR_2-OH, -NH-CHR_2-O-R_3, NH-CHR_2-O-R_4-OH, -CH_3, -C_3H_7, -C_6H_5, -OH,$   
 Phthalimido-, Succinimido-,  $-NH-CO-C_{5-C18}-Alkyl, -NH-C_5-C_{18}-Alkylen-OH,$   
 $-NH-CHR_2-O-C_5-C_{18}-Alkylen-NH_2, -NH-C_5-C_{18}-Alkylen-NH_2,$

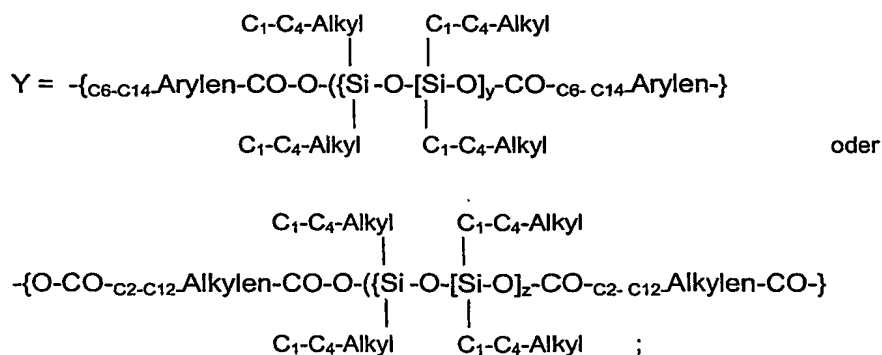
$R_2 = H, C_1-C_7 - Alkyl;$

$R_3 = C_1-C_{18} - Alkyl, HO-R_4,$

$R_4 = -CH(CH_3)-CH_2-O-C_{2-C12}-Alkylen-O-CH_2-CH(CH_3)-,$   
 $-CH(CH_3)-CH_2-O-C_{2-C12}-Arylen-O-CH_2-CH(CH_3)-,$   
 $-[CH_2-CH_2-O-CH_2-CH_2]_n-, -[CH_2-CH(CH_3)-O-CH_2-CH(CH_3)]_n-, -[O-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2]_n-,$   
 $-[(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_{6-C14}-Arylen-CO-O-(CH_2)_{2-8}]_n-,$   
 $-[(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_{2-C12}-Alkylen-CO-O-(CH_2)_{2-8}]_n-,$   
 wobei  $n = 1$  bis  $200;$

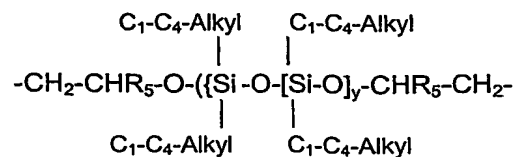
- Siloxangruppen enthaltende Polyestersequenzen des Typs  $-[(X)_r-O-CO-(Y)_s-CO-O-(X)_r]-,$   
 bei denen

$X = \{(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_{6-C14}-Arylen-CO-O-(CH_2)_{2-8}\}$  oder  
 $\{(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_{2-C12}-Alkylen-CO-O-(CH_2)_{2-8}\};$



$r = 1$  bis  $70;$   $s = 1$  bis  $70$  und  $y = 3$  bis  $50$  bedeuten;

- Siloxangruppen enthaltende Polyethersequenzen des Typs



wobei  $R_5 = H; C_1-C_4-Alkyl$  und  $y = 3$  bis  $50$  bedeuten;

- Sequenzen auf Basis von Alkylenoxidaddukten des Melamins vom Typ  
 2-Amino-4,6-di- $-C_{2-C4}-alkylenamino-1,3,5-triazin$  - Sequenzen:



- Phenoethersequenzen auf Basis zweiwertiger Phenole und C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-Diolen vom Typ  
-C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-Alkylen-O-C<sub>6</sub>-C<sub>18</sub>-Arylen-O-C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-Alkylen- Sequenzen;

und/oder

B) Mischungen aus 10 bis 90 Masse% Aminotriazinethern A) und 90 bis 10 Masse% Polyaminotriazinethern mit Molmassen von 300 bis 5000, wobei die Polyaminotriazinether durch thermische Selbstkondensation von Aminotriazinethern A) gebildet werden,

und

C) Isocyanaten der Formel R<sub>6</sub> (N = C = O)<sub>2</sub>,

wobei R<sub>6</sub> = C<sub>6</sub>-C<sub>14</sub>-Arylen, C<sub>4</sub> - C<sub>18</sub>-Alkylen, und/oder C<sub>5</sub> - C<sub>8</sub> - Cycloalkylen, und/oder oligomere Polyester bzw. Polyether mit Isocyanat- Endgruppen und Molmassen von 200 bis 5000,

wobei das Molverhältnis Diisocyanat / Summe Iminogruppen und Aminogruppen in der Triazinsequenz 0,15 : 1 bis 0,65 : 1 beträgt,

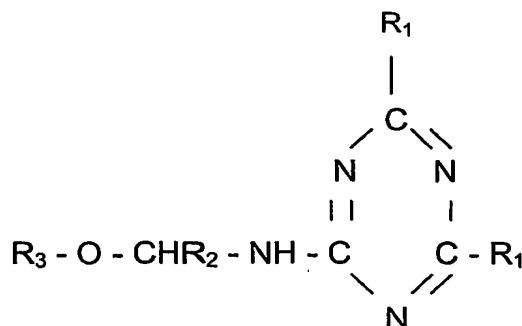
und

wobei die Mischungen 0,05 bis 2 Masse%, bezogen auf die Aminotriazinether, latente Härter enthalten können,

bei Temperaturen von 85 bis 130°C aufgeschmolzen, umgesetzt und auf textile Trägermaterialien aufgebracht werden.

7. Verfahren zur Herstellung von Prepregs für Faserverbunde hoher Festigkeit und Elastizität, dadurch gekennzeichnet, dass Prepregs, die aus 50 bis 85 Masse% textilen Flächengebilden und 15 bis 50 Masse% Carbamidsäureestergruppen enthaltenden Polyaminotriazinethern bestehen, nach einem Flüssigauftragsverfahren hergestellt werden, bei dem Dispersionen in C<sub>5</sub>-C<sub>12</sub>-Kohlenwasserstoffen und/oder C<sub>3</sub>-C<sub>12</sub>-Ketonen oder Lösungen in Dimethylsulfoxid, Dimethylformamid und/oder Dimethylacetamid mit einem Feststoffgehalt von 25 bis 70 Masse% aus

## A) Aminotriazinethern der Struktur



$R_1 = -NH_2, -NH-CHR_2-OH, -NH-CHR_2-O-R_3, NH-CHR_2-O-R_4-OH, -CH_3, -C_3H_7, -C_6H_5, -OH,$   
 Phthalimido-, Succinimido-,  $-NH-CO-C_5-C_{18}\text{-Alkyl}, -NH-C_5-C_{18}\text{-Alkylen-OH},$   
 $-NH-CHR_2-O-C_5-C_{18}\text{-Alkylen-NH}_2, -NH-C_5-C_{18}\text{-Alkylen-NH}_2,$

$R_2 = H, C_1-C_7\text{-Alkyl};$

$R_3 = C_1-C_{18}\text{-Alkyl}, HO-R_4-;$

$R_4 = -CH(CH_3)-CH_2-O-C_2-C_{12}\text{-Alkylen-O-CH}_2-CH(CH_3)-,$

$-CH(CH_3)-CH_2-O-C_2-C_{12}\text{-Arylen-O-CH}_2-CH(CH_3)-,$

$-[CH_2-CH_2-O-CH_2-CH_2]_n-, -[CH_2-CH(CH_3)-O-CH_2-CH(CH_3)]_n-, -[-O-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2-]_n-,$

$-[(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_6-C_{14}\text{-Arylen-CO-O-(CH}_2)_{2-8}-]_n-,$

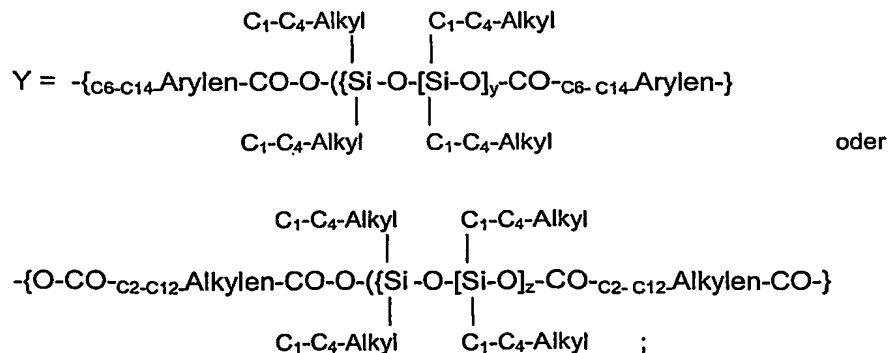
$-[(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_2-C_{12}\text{-Alkylen-CO-O-(CH}_2)_{2-8}-]_n-,$

wobei  $n = 1$  bis 200;

- Siloxangruppen enthaltende Polyestersequenzen des Typs  $-[(X)_r-O-CO-(Y)_s-CO-O-(X)_r]-,$   
 bei denen

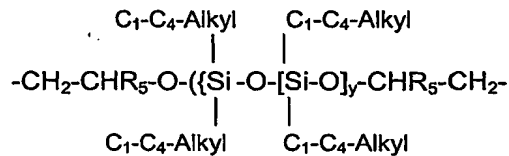
$X = \{(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_6-C_{14}\text{-Arylen-CO-O-(CH}_2)_{2-8}-\}$  oder

$-[(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_2-C_{12}\text{-Alkylen-CO-O-(CH}_2)_{2-8}-];$



$r = 1$  bis 70;  $s = 1$  bis 70 und  $y = 3$  bis 50 bedeuten;

- Siloxangruppen enthaltende Polyethersequenzen des Typs



wobei  $R_5 = \text{H}$ ;  $\text{C}_1\text{-C}_4\text{-Alkyl}$  und  $y = 3$  bis 50 bedeuten;

- Sequenzen auf Basis von Alkylenoxidaddukten des Melamins vom Typ

2-Amino-4,6-di- $\text{C}_2\text{-C}_4$ -alkylenamino-1,3,5-triazin - Sequenzen:

- Phenolethersequenzen auf Basis zweiwertiger Phenole und  $\text{C}_2\text{-C}_8$ -Diolen vom Typ

$\text{-C}_2\text{-C}_8\text{-Alkylen-O-C}_6\text{-C}_{18}\text{-Arylen-O-C}_2\text{-C}_8\text{-Alkylen-}$  Sequenzen;

und/oder

B) Mischungen aus 10 bis 90 Masse% Aminotriazinethern A) und 90 bis 10 Masse% Polyaminotriazinethern mit Molmassen von 300 bis 5000, wobei die Polyaminotriazinether durch Selbstkondensation von Triazinethern A) gebildet werden, und

C) Isocyanaten der Formel  $R_6 (\text{N} = \text{C} = \text{O})_2$ ,

wobei  $R_6 = \text{C}_6\text{-C}_{14}\text{-Arylen}$ ,  $\text{C}_4\text{-C}_{18}\text{-Alkylen}$ , und/oder  $\text{C}_5\text{-C}_8\text{-Cycloalkylen}$ , und/oder oligomere Polyester bzw. Polyether mit Isocyanat-Endgruppen und Molmassen von 200 bis 5000,

wobei das Molverhältnis Diisocyanat / Summe Iminogruppen und Aminogruppen in der Triazinsequenz 0,15 : 1 bis 0,65 : 1 beträgt, und

wobei die Mischungen 0,05 bis 2 Masse%, bezogen auf die Aminotriazinether, latente Härter enthalten können,

bei Temperaturen von 5 bis 80°C auf textile Trägermaterialien aufgebracht und bei 80 bis 120°C/0,1 bis 1 bar umgesetzt und getrocknet werden.

8. Verfahren zur Herstellung von Prepregs nach Anspruch 6 oder 7, dadurch gekennzeichnet, dass als Aminotriazinether 2,4,6-Tris(methoxymethylamino)-1,3,5-triazin eingesetzt wird.

9. Verfahren zur Herstellung von Prepregs nach mindestens einem der Ansprüche 6 bis 8, dadurch gekennzeichnet, dass als latente Härter schwache Säuren, bevorzugt
- blockierte Sulfonsäuren,
  - Alkalisalze oder Ammoniumsalze der Phosphorsäure,
  - C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Alkylester oder C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-Hydroxyalkylester von C<sub>6</sub>-C<sub>14</sub>-aromatischen Carbonsäuren oder anorganischen Säuren,
  - Salze von Melamin oder Guanaminen mit C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-aliphatischen Carbonsäuren,
  - Anhydride, Halbester oder Halbamide von C<sub>4</sub>-C<sub>20</sub>-Dicarbonsäuren,
  - Halbester oder Halbamide von Copolymeren aus ethylenisch ungesättigten C<sub>4</sub>-C<sub>20</sub>-Dicarbonsäureanhydriden und ethylenisch ungesättigten Monomeren vom Typ C<sub>2</sub>-C<sub>20</sub>-Olefine und/oder C<sub>8</sub>-C<sub>20</sub>-Vinylaromaten, und/oder
  - Salze von C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Alkylaminen bzw. Alkanolaminen mit C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-aliphatischen, C<sub>6</sub>-C<sub>14</sub>-aromatischen oder alkylaromatischen Carbonsäuren sowie anorganischen Säuren vom Typ Salzsäure, Schwefelsäure oder Phosphorsäure,
- eingesetzt werden.
10. Faserverbunde, hergestellt unter Verwendung von Prepregs nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 5.
11. Verwendung von Faserverbunden nach Anspruch 10 für Hitzeschutzkleidung, Brandschutzdecken, Elektroisolationspapiere, Baukonstruktionsteile und Fahrzeugausrüstungen.

## Zusammenfassung

### Prepregs für Faserverbunde hoher Festigkeit und Elastizität

Prepregs für Faserverbunde hoher Festigkeit und Elastizität aus 50 bis 85 Masse% textilen Flächengebilden und 15 bis 50 Masse% Carbamidsäureestergruppen enthaltenden Polyaminotriazinethern lassen sich nach einem Schmelzeauftragsverfahren oder einem Flüssigauftragsverfahren herstellen, bei dem Gemische aus Aminotriazinethern, Polyaminotriazinethern mit Molmassen von 300 bis 5000 und Diisocyanaten auf textile Trägermaterialien aufgebracht werden, wobei das Molverhältnis Diisocyanat / Summe Iminogruppen und Aminogruppen in der Triazinsequenz 0,4 : 1 bis 0,7 : 1 beträgt,

Die Prepregs sind zur Herstellung von Hitzeschutzkleidung, Brandschutzdecken, Elektroisolationspapieren, Baukonstruktionsteilen und Fahrzeugausrüstungen geeignet.

This Page is inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☒ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLORED OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☒ REPERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images  
problems checked, please do not report the  
problems to the IFW Image Problem Mailbox**